Autothermal reactor for reforming hydrocarbon fuel stream into hydrogenrich reformate stream, comprises first stage catalytic reformer for partially reforming mixed reactant stream into effluent stream, and second stage catalytic reformer

Publication number: DE10338240

Publication date:

2004-03-18

SENNOUN MOHAMMED E H (US); PETTIT WILLIAM H (US); BORUP RODNEY L (US); VOECKS GERALD E

Applicant: Classification: GEN MOTORS CORP (US)

- international:

B01B1/00; B01J8/04; C01B3/38; C01B3/48; H01M8/06; B01B1/00; B01J8/04; C01B3/00; H01M8/06; (IPC1-7):

- European:

B01B1/00B; B01J8/04B2B; C01B3/38A; C01B3/38B;

C01B3/48; H01M8/06B2 Application number: DE20031038240 20030820

Priority number(s): US20020236828 20020906

Also published as:

US6936238 (B2) US2004047800 (A1)

Report a data error here

Abstract of DE10338240

An autothermal reactor for reforming a hydrocarbon fuel stream into a hydrogen-rich reformate stream, comprises a first stage catalytic reformer for partially reforming a mixed reactant stream into an effluent stream, and in fluid communication with an outlet of a premix chamber; and a second stage catalytic reformer for further reforming the effluent stream to form the reformate stream. An autothermal reactor for reforming a hydrocarbon fuel stream into a hydrogen-rich reformate stream, comprises: (i) a premix chamber for mixing the hydrocarbon fuel stream with air and/or steam for producing a mixed reactant stream; (ii) a first stage catalytic reformer for partially reforming the mixed reactant stream into an effluent stream, and in fluid communication with an outlet of the premix chamber; (iii) a post-premix chamber for mixing the effluent stream with air, steam, and/or fuel vapor, and in fluid communication with an outlet of the first stage catalytic reformer; (iv) a second stage catalytic reformer for further reforming the effluent stream to form the reformate stream, and in fluid communication with an outlet of the post-premix chamber and in heat exchange communication with the first stage catalytic reformer; and (v) a thermal reactor for combusting the hydrocarbon fuel with air to form a combustion stream during a start-up period prior to supplying the hydrocarbon fuel stream and air and/or steam to the premix chamber, the thermal reactor having an outlet for supplying the combustion stream to the first and second stage catalytic reformers, for heating the first and second stage catalytic reformers to establish a normal operational temperature. An Independent claim is also included for a method of operating an autothermal reactor for reforming a hydrocarbon fuel into a hydrogen-rich reformate stream, comprising: (a) operating a thermal partial oxidation reactor of the autothermal reactor for a first period for thermally reforming the fuel and generating heat; (b) heating components of the autothermal reactor during the first period; (c) switching to a second period after the components achieve an operational temperature; (d) premixing the hydrocarbon fuel stream with air and/or steam for producing a mixed reactant stream; (e) reforming the mixed reactant stream in a first stage catalytic reformer of the autothermal reactor for producing an effluent stream; (f) reforming the effluent stream in a second stage catalytic reformer of the autothermal reactor for producing the reformate stream; and (g) simultaneously transferring heat between components of the autothermal reactor for maintaining operational temperatures during the second period.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide





(10) **DE 103 38 240 A1** 2004.03.18

(12)

Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: **103 38 240.2** (22) Anmeldetag: **20.08.2003** (43) Offenlegungstag: **18.03.2004** (51) Int CI.7: C01B 3/38

(30) Unionspriorität:

10-236,828

06.09.2002

US

(71) Anmelder:

General Motors Corp., Detroit, Mich., US

(74) Vertreter:

Manitz, Finsterwald & Partner GbR, 80336

München

(72) Erfinder:

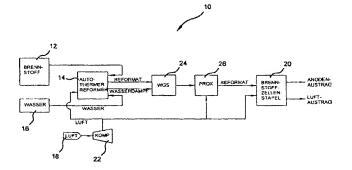
Sennoun, Mohammed E. H., Rochester, N.Y., US; Pettit, William H., Rochester, N.Y., US; Borup, Rodney L., Los Alamos, N.Mex., US; Voecks,

Gerald E., Fairport, N.Y., US

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

(54) Bezeichnung: Kompakter Partialoxidations-/Wasserdampfreaktor mit integriertem Luftvorheizer und Brennstoff- und Wasserstoffverdampfer

(57) Zusammenfassung: Es ist ein kompakter autothermer (partial oxidierender und Wasserdampf reformierender) Brennstoffreaktor zur Verwendung in einem Brennstoffzellensystem vorgesehen. Der Reaktor umfasst eine Vormischkammer, um ein Volumen aus Luft, Wasserdampf und Brennstoff in einem Abfluss vorzumischen, einen Reaktor für thermische POX, ein Reformierungssegment der ersten Stufe, eine nachbehandelnde Vormischkammer und ein Reformierungssegment der zweiten Stufe. Es ist ferner ein Verdampfer für Wasser und Brennstoff vorgesehen, um Wasserdampf und Brennstoff als ein Gas an die Vormischkammer und einen Luftdurchflusshohlraum zu liefern, der um den Reaktor herum angeordnet ist, um an die Vormischkammer gelieferte Luft vorzuerhitzen. Das Segment für thermische POX arbeitet während einer anfänglichen Startperiode zur Vorerhitzung der anderen Komponenten des Reaktors. Sobald die anderen Komponenten eine Betriebstemperatur erreichen, reformieren die Reformierungssegmente der ersten und zweiten Stufe katalytisch den Abfluss. Die Vormischkammer sowie die nachbehandelnde Vormischkammer ermöglichen eine Veränderung der O/C- und S/C-Verhältnisse, die erzielt werden, wenn der Abfluss durch die Mehrzahl von Stufen reformiert wird.



Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft Brennstoffzellensysteme und insbesondere einen verbesserten autothermen Reaktor für ein Brennstoffzellensystem.

Stand der Technik

[0002] Brennstoffzellen sind als eine Energiequelle für eine Vielzahl von Anwendungen vorgeschlagen worden, die elektrische Fahrzeugantriebsanlagen als Ersatz für Verbrennungsmotoren umfassen können. Bei Brennstoffzellen mit Protonenaustauschmembran (PEM) wird Wasserstoff an eine Anode der Brennstoffzelle und Sauerstoff als ein Oxidationsmittel an eine Kathode der Brennstoffzelle geliefert. PEM-Brennstoffzellen umfassen eine Membranelektrodenanordnung (MEA) mit einem dünnen, protonendurchlässigen, nicht elektrisch leitenden Festpolymermembran-Elektrolyten, der auf einer seiner Seiten die Anode und auf der gegenüberliegenden Seite die Kathode aufweist. Die MEA ist zwischen einem Paar elektrisch leitender Elemente schichtartig angeordnet, die als Stromkollektoren für die Anode und Kathode dienen und geeignete Kanäle und/oder Öffnungen darin zur Verteilung der gasförmigen Reaktanden der Brennstoffzelle über die Oberflächen der jeweiligen Anoden- und Kathodenkatalysatoren umfassen. Eine typische PEM-Brennstoffzelle und ihre MEA ist in den allgemein übertragenen US-Patenten Nr. 5,272,017 und 5,316,817 von Swathirajan et al. beschrieben. Üblicherweise wird eine Vielzahl einzelner Brennstoffzellen aufeinander gestapelt, um einen PEM-Brennstoffzellenstapel bzw. -stack zu bilden. [0003] Bei PEM-Brennstoffzellen wird Wasserstoff (H₂) als der Anodenreaktand und Sauerstoff (O₂) als der Kathodenreaktand verwendet. Der Sauerstoff kann entweder in reiner Form oder als Luft (eine Mischung, die hauptsächlich aus O2 und N2 besteht) geliefert werden. Bei Fahrzeuganwendungen ist es erwünscht, einen flüssigen Brennstoff, wie beispielsweise Methanol (CH₃OH), Benzin, Diesel und dergleichen als die Wasserstoffquelle für die Brennstoffzelle zu verwenden. Derartige flüssige Brennstoffe sind zur Speicherung an Bord bevorzugt, und es existiert eine nationale sowie internationale Infrastruktur zur Lieferung derartiger flüssiger Brennstoffe. Jedoch müssen derartige flüssige Brennstoffe zur Freigabe ihres Wasserstoffgehalts aufgespalten werden. Die Aufspaltungsreaktion wird allgemein in einem autothermen Reaktor erreicht. Ein herkömmlicher beispielhafter Prozess ist ein Wasserdampf/Methanol-Reformierungsprozess, bei dem Methanol und Wasser (Wasserdampf) ideal reagieren, um Wasserstoff und Kohlendioxid gemäß der Reaktion zu erzeugen: $CH_3H + H_2O \rightarrow CO_2 + 3H_2$.

[0004] Bei Kraftfahrzeuganwendungen wird die elektrische Energie, die durch die Brennstoffzelle geliefert wird, schließlich in mechanische Energie zum Fahrzeugvortrieb umgewandelt. In diesem Fall um-

fasst eine Schaltung die Brennstoffzellen und einen Elektromotor, der derart aufgebaut und angeordnet ist, um elektrische Energie von der Brennstoffzelle aufnehmen zu können und die elektrische Energie durch den Elektromotor in mechanische Energie umwandeln zu können. Als Teil der Schaltung ist eine Batterie angeordnet, um elektrische Energie aufnehmen und speichern zu können; die von der Brennstoffzelle geliefert wird, und um elektrische Energie an den Elektromotor zu liefern. Schließlich ist eine Antriebsachse derart ausgebildet und angeordnet, um Räder des Fahrzeugs zu drehen, wenn sie von dem Elektromotor angetrieben wird. Bei einem derartigen dynamischen Brennstoffzellensystem variiert die Durchflussrate des Reformatstroms (d. h. wasserstoffreicher Brennstoffstrom) mit den Lastanforderungen, die an das Brennstoffzellensystem angelegt werden.

[0005] Infolge ihrer Unzulänglichkeiten hinsichtlich Masse und Wärme sind Brennstoffverarbeitungsverfahren nach dem Stand der Technik, wie beispielsweise diejenigen, die in den allgemein übertragenen und ebenfalls anhängigen US-Patentanmeldungen mit den Seriennummern 08/975,442 und 08/980,087 von Pettit und 09/187,125 von Skala et al. und US-Patent Nr. 4,650,722 von Vanderborgh beschrieben sind, zur Verwendung mit einer Fahrzeuganwendung nicht optimal. Insbesondere sind die Systeme nach dem Stand der Technik hinsichtlich sowohl Energie als auch Raum unzureichend. Beispielsweise verwenden verschiedene Systeme nach dem Stand der Technik externe Wärmequellen zur Erzeugung von Wärme, die für die Startphase des autothermen Reaktors wie auch zur Verdampfung von Brennstoff und Wasser erforderlich ist, und sind somit thermisch unzureichend. Ferner sehen Systeme nach dem Stand der Technik allgemein Brennstoff- und Luftverdampfer als separate Komponenten vor, die zusätzlichen Packungsraum in einem Fahrzeug erfordern.

Aufgabenstellung

[0006] Daher besteht in der Industrie ein Bedarf, ein Brennstoffver arbeitungssystem vorzusehen, das für eine einfache Integration in eine Fahrzeuganwendung kompakt ausgebildet und dazu in der Lage ist, Übergangslastanforderungen insbesondere in der Startphase handhaben zu können. Ferner sollte der Brennstoffprozessor einen erhöhten Wirkungsgrad durch ein verbessertes Wärmemanagement aufweisen und sollte kostengünstig herzustellen sein.

[0007] Demgemäß sieht die vorliegenden Erfindung einen autothermen Reaktor zur Reformierung eines Kohlenwasserstoff-Brennstoffstromes in einen Reformatstrom vor, der Wasserstoff umfasst. Der autotherme Reaktor umfasst einen autothermen Reformer der ersten Stufe zur Ausführung der thermischen Partialoxidation und einen autothermen Reformer der zweiten Stufe. Der autotherme Reaktor umfasst eine Vormischkammer zur Mischung des Kohlenwasser-

stoff-Brennstoffstroms mit zumindest einer der Substanzen Luft und Wasserdampf, um einen ersten Vorreformatstrom zu erzeugen; eine erste Stufe zur partiellen Reformierung des ersten Vorreformatstroms in einen zweiten Vorreformatstrom. Die erste Stufe steht in Fluidverbindung mit der Vormischkammer. Eine nachgeordnete Vormischkammer mischt den zweiten Vorreformatstrom mit zumindest einer der Substanzen: Luft, Wasserdampf und Brennstoffdampf. Die nachgeordnete Vormischkammer steht in Fluidverbindung mit der ersten Stufe und mit einer zweiten Stufe zur weiteren Reformierung des zweiten Vorreformatstroms in den Reformatstrom. Die zweite Stufe steht in Fluidverbindung mit der nachgeordneten Vormischkammer und in Wärmetauscherverbindung mit der ersten Stufe. Im Betrieb reagiert in der ersten Stufe anfänglich ein Brennstoff- und Luftstrom, um eine schnelle Startphase des autothermen Reaktors zu ermöglichen und Wärme zur Erwärmung der ersten und zweiten Reformierungsstufen zu erzeugen, um deren Betriebstemperaturen herzustellen.

[0008] Die erste Stufe umfasst einen Abschnitt für thermische Partialoxidation und einen ersten katalytischen autothermen Reaktor in Fluidverbindung mit dem Abschnitt für thermische Partialoxidation. In der ersten Stufe verbrauchen die exothermen Reaktionen, die mit der katalytischen Partialoxidation in Verbindung stehen, Sauerstoff und spalten den Großteil der Einlasskohlenwasserstoffzufuhr. Die zweite Stufe umfasst einen zweiten katalytischen autothermen Reaktor, der die endotherme Wasserdampfreaktion mit dem Kohlenwasserstoff fördert, der die erste Stufe verlässt. Zu Beginn reagieren in dem Abschnitt für thermische Partialoxidation der Brennstoff- und Luftstrom thermisch, die darin durch Brennstoff- und Luftinjektoren eingespritzt werden, um die Wärme zur Erwärmung der ersten und zweiten Stufen während solcher Ereignisse, wie beispielsweise der Startphase, zu erzeugen.

[0009] Die Vormischkammer des autothermen Reaktors umfasst eine Mischkammer in Fluidverbindung mit einer Luftquelle, eine Vielzahl von radial angeordneten Brennstoffdampfinjektoren in Fluidverbindung mit der Mischkammer, eine Vielzahl von radial angeordneten Wasserdampfinjektoren in Fluidverbindung mit der Mischkammer und ein Gitter, das in der Mischkammer angeordnet ist und eine Vielzahl von Vormischeinspritzlöchern besitzt. Durch das Gitter strömt Luft, die sich mit dem Brennstoff und Wasserdampf mischt, die durch die Injektoren geliefert werden, um den ersten Vorreformatstrom zu erzeugen und ferner den ersten Vorreformatstrom an die erste Stufe zu liefern.

[0010] Ferner umfasst der autotherme Reaktor eine Außenschale mit einem Durchgang durch diese in Fluidverbindung mit der Vormischkam- mer und in Wärmetauscherverbindung mit der ersten Stufe, wobei die Luft vor dem Eintritt in die Vormischkammer von der Luftquelle durch den Durchgang zur Vorerwärmung der Luft strömt.

[0011] Der autotherme Reaktor der vorliegenden Erfindung umfasst auch einen Verdampfer in Fluidverbindung mit der Vormischkammer und in Wärmetauscherverbindung mit dem Reformatstrom, der die zweite Stufe verlässt, wodurch Wärme von dem Reformatstrom einen Betrieb des Verdampfers ermöglicht, um Brennstoff und Wasser zur Lieferung an die Vormischkammer durch die Brennstoffdampf- und Wasserdampfinjektoren zu verdampfen.

[0012] Aus der nun folgenden detaillierten Beschreibung werden weitere Anwendungsgebiete der vorliegenden Erfindung offensichtlich. Es sei jedoch zu verstehen, dass die detaillierte Beschreibung und spezifische Beispiele, während sie die bevorzugte Ausführungsform der Erfindung darstellen, nur zu Veranschaulichungszwecken angegeben und nicht dazu bestimmt sind, den Schutzumfang der vorliegenden Erfindung zu beschränken.

Ausführungsbeispiel

[0013] Die Erfindung wird im Folgenden nur beispielhaft unter Bezugnahme auf die begleitenden Zeichnungen beschrieben, in welchen:

[0014] Fig. 1 eine schematische Ansicht eines Brennstoffzellensystems mit einem autothermen Reaktor gemäß den Grundsätzen der vorliegenden Erfindung ist;

[0015] **Fig.** 2 eine perspektivische Ansicht des autothermen Reaktors teilweise im Schnitt ist;

[0016] **Fig.** 3 eine schematische Schnittansicht entlang Linie 3-3 von **Fig.** 2 des autothermen Reaktors ist:

[0017] **Fig.** 4 eine schematische Schnittansicht entlang der Linie 4-4 von **Fig.** 3 einer Vormischkammer des autothermen Reaktors ist;

[0018] **Fig.** 5 eine Schnittansicht entlang der Linie 5-5 von **Fig.** 4 der Vormischkammer des autothermen Reaktors ist; und

[0019] **Fig.** 6 eine Schnittansicht entlang der Linie 6-6 von **Fig.** 2 eines Brennstoff- und Wasserverdampfers des autothermen Reaktors ist.

[0020] Die folgende Beschreibung der bevorzugten Ausführungsformen ist lediglich beispielhafter Natur und nicht dazu bestimmt, die Erfindung, ihre Anwendungen oder ihre Gebrauchsmöglichkeiten zu begrenzen.

[0021] In Fig. 1 ist ein beispielhaftes Brennstoffzellensystem 10 gezeigt. Das System 10 umfasst einen Brennstofftank 12 zur Lieferung eines Kohlenwasserstoff-Brennstoffes, wie beispielsweise Methanol (CH₃OH) oder Benzin (Mischung aus Paraffinen, Olefinen und Aromaten), an einen autothermen Reaktor 14, der gemäß den Grundsätzen der vorliegenden Erfindung aufgebaut ist. Ferner ist auch ein Wassertank 16 und eine Luftquelle 18 vorgesehen, die jeweils Wasser und Luft an den autothermen Reaktor 14 liefern. Ferner wird Luft an einen Brennstoffzellenstapel 20 geliefert, wie nachfolgend detaillierter beschrieben ist, wobei die Luft durch das System durch

einen Kompressor 22 getrieben wird.

[0022] Der autotherme Reaktor 14 spaltet den Kohlenwasserstoff-Brennstoff unter Verwendung von Wasserdampf und Luft, die mit dem Kohlenwasserstoff-Brennstoff reagieren, um ein wasserstoffreiches Reformat zu erzeugen. Beispielsweise reagieren bei einem Benzinreformierungsprozess Benzin, Luft und Wasser (als Wasserdampf) idealerweise, um Wasserstoff und Kohlendioxid gemäß der folgenden Reaktion zu erzeugen: $C_xH_y + xH_2O \rightarrow xCO + (y/2 + x)H_2$. Jedoch erzielt der autotherme Reaktor 14 tatsächlich ein Reformatgas, das Wasserstoff, Kohlenmonoxid, Kohlendioxid und Wasser umfasst. Der Kohlenmonoxidgehalt des Reformatstromsist zum direkten Gebrauch in dem Brennstoffzellenstapel 20 jedoch allgemein zu hoch, der in einer Beschädigung der Anode des Brennstoffzellenstapels 20 resultieren würde. Daher strömt der erzeugte Reformatstrom an einen Wasser-Gas-Shift-Reaktor 24 (WGS-Reaktor) und weiter in einen Reaktor 26 für selektive Oxidation (PROX-Reaktor), um den Kohlenmonoxidgehalt auf ein akzeptables Niveau zu verringern.

[0023] Innerhalb des WGS-Reaktors 24 wird Wasser (als Wasserdampf) dem Reformat, das von dem autothermen Reaktor 14 geliefert wird, in der Anwesenheit eines geeigneten Katalysators zugesetzt, wodurch seine Temperatur verringert und das Verhältnis von Wasserdampf zu Kohlenstoff darin erhöht wird. Der Wasserdampf wird von dem autothermen Reaktor 14 geliefert, wie unten detailliert beschrieben ist. Ein höheres Verhältnis von Wasserdampf zu Kohlenstoff dient dazu, den Kohlenmonoxidgehalt des Reformats gemäß der folgenden idealen Reaktion abzusenken: $CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$. Auf diese Art und Weise wird die Menge an Kohlenmonoxid verringert. Jedoch ist dies noch nicht ausreichend dafür, dass der Reformatstrom in dem PEM-Brennstoffzellenstapel 20 sicher verwendet werden kann.

[0024] Der PROX-Reaktor **26** ist zur weiteren Verringerung des Kohlenmonoxidgehalts auf ein akzeptables Niveau zur Verwendung in dem Brennstoffzellenstapel **20** vorgesehen. Der Reformatstrom, der den WGS-Reaktor **24** verlässt, tritt in den PROX-Reaktor **26** ein, in welchem er katalytisch mit Sauerstoff, der in der Form von Luft von der Luftquelle **18** geliefert wird, gemäß der folgenden Reaktion reagiert: CO + $\frac{1}{2}$ O₂ \rightarrow CO₂. Der Reformatstrom strömt dann von dem PROX-Reaktor **26** an den Brennstoffzellenstapel **20**, um elektrische Energie zu erzeugen.

[0025] Wie insbesondere in den Fig. 2 bis 6 gezeigt ist, umfasst der autotherme Reaktor 14 der vorliegenden Erfindung ein zylindrisches Gehäuse 30, das eine Vormischkammer 32, ein Segment 34 zur thermischen Partialoxidation (POX), ein Reformierungssegment 36 der ersten Stufe, eine nachgeordnete Vormischkammer 38, ein Reformierungssegment 40 der zweiten Stufe, einen kombinierten Wasser und Brennstoff-Verdampfer 42 und einen Reformatstromauslass 44 umfasst. Der kombinierte Wasser und Brennstoff-Verdampfer 42 nimmt jeweils Wasser

und Brennstoff von den Wasser- und Brennstofftanks 12, 16 auf und verdampft diese, wie nachfolgend detaillierter beschrieben ist. Der Wasser- und Brennstoffdampf wird von dem kombinierten Verdampfer 42 an die Vormischkammer 32 geführt. Auch wird Wasserdampf an den WGS-Reaktor 24 geführt. Bevorzugt werden Wasser, Brennstoffdampf und Luft an die nachgeordnete Vormischkammer 38 geleitet. In der Vormischkammer 32 werden Wasser (Wasserdampf) und Brennstoff mit Luft von der Luftquelle 18 gemischt. Nach einer Anfangsperiode einer thermischen POX-Reaktion (d. h. Startphase), die nachfoldetaillierter beschrieben ist, wird Luft/Brennstoff/Wasser-Abfluss von der Vormischkammer 32 durch das Reformierungssegment 36 der ersten Stufe geführt, in welchem er partial reformiert und in die nachgeordnete Vormischkammer 38 geführt wird. Zusätzlich wird Brennstoff, Wasser oder Luft oder eine beliebige Kombination derselben dem partial reformierten Abfluss hinzugesetzt, der dann durch das Reformierungssegment 40 der zweiten Stufe geführt wird, um die Mischung vollständig zu reformieren, wodurch der Reformatstrom erzeugt wird. Der Reformatstrom strömt durch den Verdampfer 42 und tritt von dem autothermen Reaktor 14 durch den Auslass 44 aus.

[0026] Das zylindrische Gehäuse 30 umfasst eine Außenschale 50 und eine Innenschale 52, zwischen denen ein ringförmiger Hohlraum 54 gebildet wird. Der Hohlraum 54 ist durch einen ersten Einlass 56 zugänglich, der in Fluidverbindung mit der Luftquelle 18 steht. Es sind zusätzliche Einlässe 59 und 61 vorgesehen, um eine beliebige Kombination aus Brennstoff, Luft und Wasserdampf zu liefern. Bevorzugt ist der Einlass 59 als ein Brennstoffinjektor ausgebildet, und der Einlass 61 ist als ein Luft- und/oder Wasserdampfinjektor ausgebildet. Bevorzugt ist der Einlass 56 als ein Luftinjektor ausgebildet. Ferner steht der Hohlraum 54 in Fluidverbindung mit der Vormischkammer 32, wodurch Luft von der Luftquelle 18 durch den Einlass 56, durch den Hohlraum 54 und in die Vormischkammer 32 strömt. Während des Verlaufs durch den Hohlraum 54 befindet sich die Luft in Wärmetauscherbeziehung zu der inneren Schale 52. Auf diese Art und Weise wird, da sich die innere Schale 52 als Ergebnis des Betriebs des autothermen Reaktors 14 aufheizt, wie nachfolgend detailliert beschrieben ist, die Luft zum Mischen innerhalb der Vormischkammer 32 vorerhitzt. Allgemein erreicht die Luft eine Temperatur von etwa 600°C oder mehr zur Verwendung indem autothermen Reaktor 14. Ferner ist das Gehäuse 30 bevorzugt in einer Lage oder mehreren Lagen aus Isolierungsmaterial (nicht gezeigt) eingeschlossen, das ermöglicht, dass der autotherme Reaktor 14 energieeffektiver ist.

[0027] Die Vormischkammer 32 ist an einem Ende des zylindrischen Gehauses 30 angeordnet. Das Segment 34 für thermische POX, das Reformierungssegment 36 der ersten Stufe, die nachgeordnete Vormischkammer 38 und das Reformierungsseg-

ment 40 der zweiten Stufe sind in der Innenschale 52 angeordnet. Das Segment 34 für thermische POX und das Reformierungssegment 36 der ersten Stufe besitzen eine allgemein zylindrische Form mit einem zentral angeordneten ringförmigen Hohlraum 60, der durch diese verläuft. Das Reformierungssegment 40 der zweiten Stufe besitzt eine zylindrische Form und ist in dem zentral angeordneten Hohlraum 60 des Segments 34 für thermische POX und Reformierungssegments 36 der ersten Stufe angeordnet. Ein zylindrisch geformter Separator 62 trennt das Segment 34 für thermische POX und das Reformierungssegment 36 der ersten Stufe von dem Reformierungssegment 40 der zweiten Stufe und sieht eine Wärmetauscherbeziehung dazwischen vor.

[0028] Das Segment **34** für thermische POX, das Reformierungssegment **36** der ersten Stufe und das Reformierungssegment **40** der zweiten Stufe verlaufen von dem Ende der Vormischkammer durch einen Abschnitt der Innenschale **52** bis kurz vor eine Rückseite **64**, wodurch die nachgeordnete Vormischkammer **38** definiert wird.

[0029] Das Segment 34 für thermische POX steht in Fluidverbindung mit den Flüssig-Brennstoff- und Luftinjektoren 66, die durch die Vormischkammer 32 in direkter Fluidverbindung mit dem Segment 34 für thermische POX verlaufen. Bei der Startphase werden flüssiger Brennstoff und Luft in das Segment für thermische POX eingespritzt, in welchem sie zur Bildung einer Partialoxidationsreaktion gezündet werden. Dieser Prozess verläuft exotherm und erzeugt eine erhebliche Menge an Wärme, die zum Erwärmen der anderen Komponenten des autothermen Reaktors 14 verwendet wird. Allgemein müssen die Reformierungssegmente 36, 40 der ersten und zweiten Stufe eine Temperatur von zumindest 400°C erreichen, um normal arbeiten zu können. Wie oben erwähnt ist, wird die Zeitperiode, während der das Segment 34 für thermische POX arbeitet, als Startphase bezeichnet. Die heißen Produktgase, die aus der Startperiode resultieren, strömen durch das Reformierungssegment 36 der ersten Stufe, das nachgeordnete Vormischsegment 38, das Reformierungssegment 40 der zweiten Stufe, den Verdampfer 42 und aus dem Auslass 44. Luft, die durch den Hohlraum 54 des Gehäuses 30 strömt, wird durch die Wärme vorerhitzt, die von der POX-Reaktion erzeugt wird, wenn die Wärme durch die innere Schale 52 übertragen wird.

[0030] Es sei weiter angemerkt, dass ein Übergangstemperatursteuerelement (nicht gezeigt) optional zwischen dem Segment 34 für thermische POX und dem Reformierungssegment 36 der ersten Stufe angeordnet sein kann. Das Übergangstemperatursteuerungselement besitzt geeignete Abmessungen, um eine gewünschte Temperaturverringerung des Gases, das das Segment 34 für thermische POX verlässt, zu bewirken und Übergangstemperaturänderungen in der Startphase zu steuern. Das Übergangstemperatursteuerelement umfasst ferner eine ge-

eignete thermische Masse, um die Temperaturverringerungsfunktion über eine ausreichende Zeitdauer ausführen zu können, wodurch ermöglicht wird, dass sich die ersten und zweiten Reformierungssegmente 36, 40 auf ihre Zündtemperaturen aufheizen können, ohne dass sie plötzlich Hochtemperaturabflüssen von dem Segment 34 für thermische POX ausgesetzt werden.

[0031] Während des Normalbetriebs des autothermen Reaktors 14 wird der Luft-, Brennstoff- und Wasser-(Wasserdampf-)Abfluss von der Vormischkammer 32 durch das Segment 34 für thermische POX zur Reformierung durch die verbleibenden Segmente, die Katalysatorbetten umfassen, geleitet. Die Vormischkammer 32 wird insbesondere unter Bezugnahme auf die Fig. 4 und 5 detaillierter beschrieben. Die Vormischkammer 32 umfasst ein scheibenförmiges Gehäuse 70, das darin einen Hohlraum 72 definiert und eine zentrale Öffnung 74 aufweist, die in Längsrichtung durch dieses verläuft, wobei ihre Umfangsfläche 76 einen Abschnitt des Auslasses 44 definiert. Ein scheibenförmiges Gitter 78 ist innerhalb des Hohlraums 72 angeordnet und teilt den Hohlraum in erste und zweite Kammern 72a, 72b. Das scheibenförmige Gitter 78 umfasst eine Vielzahl von radial ausgerichteten Vormischinjektionslöchern 80. Der Hohlraum 54 des Gehäuses 30 steht in Fluidverbindung mit der ersten Kammer 72a, wodurch vorerhitzte Luft an die Vormischkammer 32 geliefert wird. Es ist eine Serie von Brennstoffdampf- und Wasser-(als Wasserdampf)-Einlässen 82 durch eine äußere Umfangswand 84 der Vormischkammer 32 radial angeordnet, die jeweils in Fluidverbindung mit der zweiten Kammer 72b des Hohlraums 72 durch eine Serie von Durchlässen 86 stehen. Die Brennstoff- und Wasserdampfeinlässe 82 sind abwechselnd um den Umfang angeordnet, wodurch infolge mehrerer Aufprallbereiche eine bessere Vermischung erfolgt.

[0032] ie Reformierungssegmente 36, 40 der ersten und zweiten Stufe sehen allgemein katalytische Partialoxidationsreaktionen (CPO-Reaktionen) Wasserdampfreformierungsreaktionen (SR-Reaktionen) vor. Es sei zu verstehen, dass zwischen den auftretenden Reaktionen eine Überdeckung erfolgt, wobei die CPO-Reaktion vorwiegend eine Reaktion zwischen Brennstoff und Luft betrifft und die SR-Reaktion vorwiegend eine Reaktion zwischen Brennstoff und Wasser betrifft. Die Erfindung wird hier unter Bezugnahme auf diese Reaktionen beschrieben. Es sei jedoch angemerkt, dass, da Brennstoff, Wasser (als Wasserdampf) und Luft gemeinsam hinzugesetzt werden, die CPO und SR kombiniert den autothermen Reformierungsprozess ausführen. Bei der CPO-Reaktion reagiert der Brennstoff exotherm mit einer unterstöchiometrischen Menge an Luft, um Kohlenmonoxid, Wasserstoff und Kohlenwasserstoffe mit niedrigem Molekulargewicht zu erzeugen. Die CPO-Reaktion ist allgemein Brennstoffreich. Die Produkte der CPO-Reaktion wie auch Wasserdampf, der darin eingeführt ist, reagieren in der SR-Reaktion endotherm, bei der die niedrigeren Kohlenwasserstoffe mit dem Wasserdampf reagieren, um zusätzliches H₂, CO und CO₂ in dem Reformatgas zu erzeugen. Das Reformatgas umfasst allgemein Kohlendioxid, Kohlenmonoxid, Wasserstoff, Stickstoff, Wasser und Methan. Die durch die exotherme CPO-Reaktion erzeugte Wärme wird in der SR-Reaktion wie auch zum Vorheizen der Luft in dem Hohlraum **54** verwendet, wie oben beschrieben ist.

[0033] Das Reformierungssegment 36 der ersten Stufe umfasst einen CPO-Abschnitt 90 und einen SR-Abschnitt 92. Der CPO-Abschnitt 90 umfasst einen bevorzugten CPO-Katalysator, der ein oder mehrere Edelmetalle umfasst, die beispielsweise Pt, Rh, Pd. Ir. Os. Au und Ru umfassen können. Ferner können andere Nicht-Edelmetalle oder Kombinationen von Metallen, wie beispielsweise Ni und Co, darin verwendet werden. Der SR-Abschnitt 92 umfasst einen SR-Katalysator, der typischerweise ein Edelmetall und/oder Nichtedelmetall umfasst, das bzw. die ähnlich denen für den oben beschriebenen CPO-Abschnitt ist bzw. sind. Ähnlicherweise umfasst das Reformierungssegment 40 in der zweiten Stufe bevorzugt einen CPO-Abschnitt 94 zusammen mit einem SR-Abschnitt 96 zur weiteren Reformierung des Abflusses, der die nachgeordnete Vormischkammer 38 verlässt, wie nachfolgend detaillierter beschrieben ist.

Die hier beschriebene Konstruktion sieht [0034] eine integrale Kombination von Reaktionswärme und Temperaturen, die mit diesen Reaktionen in Verbindung stehen, vor, die in dem kompakten effizienten autothermen Reaktor 14 resultiert. Die exotherme CPO-Reaktion, die in dem Reformierungssegment 36 der ersten Stufe stattfindet, erzeugt Wärme in dem Katalysatorbett und wird in den Gasstrom, der dieses verlässt, übertragen. Diese Wärme wird an das Reformierungssegment 40 der zweiten Stufe für die Dampfreformierungsreaktion (SR-Reaktion) übertragen. Die endotherme SR-Reaktion erfordert Wärme, um die Reformierungsreaktion mit einem der folgenden oder deren Kombinationen zu vervollständigen: (1) den einfachen Kohlenwasserstoffe, die in den CPO-Reaktionen nicht umgewandelt worden sind, und (2) zusätzlichem Brennstoff und Wasserdampf, die in die nachgeordnete Vormischkammer 38 eingespritzt werden können. Der Wasserdampf kann über einen Durchgang durch den kombinierten Verdampfer 42 überhitzt werden, um die SR-Reaktion zu steigern. Die Temperatur an dem CPO-Eintrittsabschnitt (grob das erste Drittel der Länge) ist relativ hoch und liegt in der Größenordnung von 600°C. Diese Zone mit hoher Temperatur, die mit dem SR-Austritt übereinstimmt, unterstützt eine bessere Vervollständigung der SR-Reaktion von Kohlenwasserstoffen. Der Zusatz von Brennstoff und Wasserdampf wie auch in einigen Fällen Luft ist eine Funktion der jeweiligen bestimmten Anforderungen an die Leistungsfähigkeit des autothermen Reaktors. Wenn nur Wasserdampf erforderlich ist, um den Wasserdampf aufzubessern, der ursprünglich an das Reformierungssegment 36 der ersten Stufe geliefert wurde, muss nur Wasserdampf hinzugesetzt werden. Wenn die Temperatur und Wärme an dem Auslass 44 des Reformierungssegments 40 der zweiten Stufe angemessen sind. kann zusätzlicher Wasserdampf und Brennstoff in die nachgeordnete Vormischkammer 38 hinzugesetzt werden, um die Gesamtwasserstoffproduktion zu erhöhen. Wenn zusätzliche Wärme erforderlich ist, um den zugesetzten Zufuhrbrennstoff umzusetzen, kann ein gewisser Anteil Luft mit dem Wasserdampf und Brennstoff hinzugesetzt werden, um einen gewissen Anteil des Brennstoffs oder des Wasserstoffs und Kohlenmonoxid zu oxidieren, die in dem Reformierungssegment 36 der ersten Stufe erzeugt werden, um den zusätzlichen Brennstoff, der mit Wasserdampf versetzt ist, umzusetzen. Wenn angemessen Wasserdampf von dem Reformierungssegment 36 der ersten Stufe verfügbar ist, um mehr Brennstoff umzusetzen, kann zusätzlicher Zufuhrbrennstoff mit oder ohne zusätzliche Luft hinzugesetzt werden. Es ist offensichtlich, dass abhängig von den Anforderungen und der Optimierung der Reformierungsreaktion eine beliebige der Substanzen Brennstoff, Wasserdampf und Luft oder weitere an die nachgeordnete Vormischkammer 38 geliefert werden können. Der autotherme Reaktor 14, der hier beschrieben ist, ist flexibel und dazu in der Lage, gemäß einer Vielzahl von Strategien betrieben werden zu können, die beispielsweise die oben beschriebenen umfassen kön-

[0035] Um den Bedarf nach externen Wärmetauschern zu verringern, in denen der SR-Abfluss gekühlt wird, werden der eintretende Brennstoff, die eintretende Luft und der eintretende Wasserdampf an dem Auslass 44 des autothermen Reformers 14 vorerhitzt. Dieses Verfahren des Wärme- übergangs auf die eintretenden Reaktanden sieht die Vorerhitzung vor, die für den CPO-Abschnitt 90 erforderlich ist, um seine Aktivierungstemperatur über einen breiten Bereich beizubehalten. Die kombinierten Temperaturund Wärmeprofile der drei Funktionen (Reaktandenvorerhitzung, CPO und SR) können durch Integration derselben, wie in Fig. 5 gezeigt ist, synchronisiert werden. Um den Wärmewirkungsgrad zu optimieren und die Möglichkeit einer Kohlenstoffbildung aus Kohlenwasserstoff-Brennstoffen und einer Leckage von Methan von dem SR zu minimieren, können die Abmessungen jedes Segments geändert werden, um breite Bereiche von Betriebsdurchsätzen anzupassen. Parameter, die geändert werden können, umfassen den Außendurchmesser des ringförmigen CPO-Abschnitts 90, die Dicke und Länge des Katalysatorbetts des Reformierungsabschnitts 36 der ersten Stufe, den Durchmesser und die Länge des Katalysatorbetts des Reformierungsabschnitts 40 der zweiten Stufe (wobei ein Teil von diesen von den Katalysatorbettabmessungen des Reformierungsabschnitts der ersten Stufe abhängig ist), die relativen Längen der Katalysatorbetten für den CPO-Abschnitt 90, 94 und SR-Abschnitt 92, 96 in den Reformierungsabschnitten 36, 40 der ersten bzw. zweiten Stufe, und die Form bzw. Länge des Vormischwärmetauscherabschnitts für Einlassreaktand: Andere Parameter, die geändert werden können, um den Wirkungsgrad und die Kompaktheit des autothermen Reaktors 14 weiter zu verbessern, umfassen die Auswahl des Katalysators sowie die Katalysatorbeladungen, um Aktivitäten mit den Wärme- und Temperaturanforderungen abzustimmen. Durch Integration des SR-Abschnitts 96 in dem Zentrum des Reaktors, in dem Temperatur- und Wärmeprofile durch den Zusatz von Brennstoff und Wasserdampf in den SR-Abschnitt 96 der zweiten Stufe und durch das Verhältnis von Sauerstoff zu Kohlenstoff des CPO unabhängig gesteuert werden können, wird ein vielseitigerer und effizienterer autothermer Reaktor 14 möglich.

[0036] Der Verdampfer 42 für Wasser und Brennstoff ist an einer Außenseite 110 der Vormischkammer 32 befestigt und umfasst eine Ringstruktur 112, die eine zentrale Öffnung 114 und radiale Öffnungen 115 formt. Der Reformatstrom, der den Auslass 44 verlässt, strömt durch die zentralen und radialen Öffnungen 114, 115 und steht in Wärmetauscherbeziehung mit einer Innenwand 116 der zentralen Öffnung 114 und Wänden 117 der radialen Öffnungen 115. Intern sind erste und zweite Kanäle 118 bzw. 120 definiert, die um die Ringstruktur 112 verlaufen. Der erste Kanal 118 steht in Fluidverbindung mit einem ersten Einlass 122 und einem ersten Auslass 124. Ähnlicherweise steht der zweite Kanal 120 in Fluidverbindung mit einem zweiten Einlass 126 und einem zweiten Auslass 128. Auf diese Art und Weise können Wasser und Brennstoff durch den Verdampfer 42 für Wasser und Brennstoff gleichzeitig an den autothermen Reaktor 14 ohne Mischung geliefert werden. Im Allgemeinen strömt Wasser bzw. Brennstoff von den Brennstoff- und Wassertanks 12, 16 in jeweils einen der ersten und zweiten Einlässe 122, 126. Der heiße Reformatstrom, der den Auslass 44 verlässt, heizt die Innenwand 116 und Wände 115 des Verdampfers 42 für Wasser und Brennstoff ausreichend auf, wodurch das flüssige Wasser und der flüssige Brennstoff, die eintreten, in gasförmige Form verdampft und durch die ersten und zweiten Auslässe 124, 128 an die Durchlässe 86 der Vormischkammer 32 geliefert werden. Gleichzeitig wird die Temperatur des Reformatstroms zur weiteren unterstromigen Verarbeitung verringert, wie oben beschrieben ist. Ferner stehen die ersten und zweiten Auslässe 124, 128 des Verdampfers 42 für Wasser bzw. Brennstoff in Fluidverbindung mit der nachgeordneten Vormischkammer 38, um eine zweite Stufe der Mischung mit einem teilweise behandelten Abfluss zu ermöglichen, wie nachfolgend detaillierter beschrieben ist. Wasserdampf, der von dem WGS-Reaktor und für den ergänzenden Zusatz in die nachgeordnete Vormischkammer 38 benötigt wird, wird ebenfalls von dem Verdampfer 42 für Wasser bzw. Brennstoff geliefert. [0037] Die Ringstruktur 112 ist in ihrer vorliegenden

Form als eine allgemein sternförmige Struktur mit verschiedenen Biegungen bzw. Bögen 130 gezeigt, die sich radial erstreckende Arme bilden. Auf diese Art und Weise ist die Oberfläche der Innenwand 116 wie auch der Formwände 115 maximiert, wodurch eine ausreichende Wärmetauscherbeziehung mit dem austretenden Reformatstrom ermöglicht wird. Somit werden der Brennstoff und das Wasser vollständig in gasförmige Form verdampft. Es sei jedoch angemerkt, dass, obwohl die vorliegende Form der Ringstruktur 112 eine bevorzugte Ausführungsform darstellt, die Ringstruktur 112 auch eine beliebige Form annehmen kann, wie es bestimmte Konstruktionen erfordern können.

[0038] Im Betrieb wird der autotherme Reaktor 14 während einer Startperiode anfänglich betrieben, bis eine ausreichende Temperatur erreicht ist, und wird dann in einen Normalbetrieb geschaltet. Während der Startperiode werden flüssiger Brennstoff und Luft durch den Injektor für Brennstoff bzw. Luft in das Segment 34 für thermische POX eingespritzt, in dem sie in einer stark exothermen Reaktion gezündet werden. Das Reformatprodukt dieser Reaktion strömt durch die anderen Segmente des autothermen Reaktors 14 und aus dem Auslass 44 heraus. Die Temperatur dieses Reformatprodukts dient dazu, die Katalysatorbetten der Reformierungssegmente 36, 40 der ersten und zweiten Stufe wie auch den Verdampfer 42 für Wasser und Brennstoff zu erhitzen. Bei Erreichen einer normalen Betriebstemperatur (beispielsweise etwa 400°C) schaltet der autotherme Reaktor 14 in einen Normalbetrieb, in welchem Wasser und Brennstoff an den Verdampfer 42 geliefert werden, in gasförmige Form verdampft werden und an die Vormischkammer 32 geliefert werden. In der Vormischkammer 32 werden der Brennstoff und der Wasserdampf mit vorerhitzter Luft gemischt, die durch den Hohlraum 54 geliefert wird, um einen Abfluss zu bilden. Dieser Abfluss wird dann von der Vormischkammer 32 durch die Einspritzlöcher 80 an das Reformierungssegment 36 der ersten Stufe geliefert, wobei jegliche Reaktion in dem Segment 34 für thermische POX umgangen wird. Dieser Abfluss umfasst ein erstes Verhältnis von Sauerstoff zu Kohlenstoff (O/C-Verhältnis) und ein erstes Verhältnis von Wasserdampf zu Kohlenstoff (S/C-Verhältnis).

[0039] Der Abfluss reagiert katalytisch in den CPOund SR-Abschnitten 90, 92 des Reformierungssegments 36 der ersten Stufe, und der resultierende partiell behandelte Abfluss strömt an die nachgeordnete Vormischkammer 38. An diesem Punkt haben sich die O/C- und S/C- Verhältnisse des partiell behandelten Abflusses infolge der Reformierung durch das Reformierungssegment 36 der ersten. Stufe geändert und befinden sich aller Wahrscheinlichkeit nach auf keinem erwünschten Niveau für eine effiziente Reformierung. Somit wird der partiell behandelte Abfluss, während er sich in der nachgeordneten Vormischkammer 38 befindet, optional mit einem bzw. einer Kombination aus Luft, Wasser (Wasserdampf) und Brennstoff gemischt. Auf diese Art und Weise kann ein zweites O/C-Verhältnis und ein zweites S/C-Verhältnis zur optimalen Reformierung in dem Reformierungssegment 40 der zweiten Stufe erreicht werden. Nach einem erneuten Mischen in der nachgeordneten Vormischkammer 38 strömt der Abfluss durch die CPO- und SR-Abschnitte 94, 96 des Reformierungssegments 40 der zweiten Stufe, in dem er in das Endproduktreformat katalytisch reformiert wird, das den Auslass 44 verlässt, wie oben beschrieben ist.

[0040] Der autotherme Reaktor 14 der vorliegenden Erfindung sieht eine kompakte und effiziente Vorrichtung zur Reformierung eines auf Wasserstoff basierenden Brennstoffs vor. Der Verdampfer 42 für Wasser und Brennstoff beseitigt den Bedarf nach externen Verdampfern für Wasser und Brennstoff, die eine Erwärmung von einer externen Quelle und weiteren Packungsraum in einem Fahrzeug erfordern würden. Ferner ermöglicht der mehrstufige Aufbau eine Änderung der O/C- und S/C-Verhältnisse, wenn der Brennstoff reformiert wird, was in einem Reformatprodukt mit besserer Qualität resultiert. Der Aufbau des autothermen Reaktors 14 ermöglicht einen Gesamtwirkungsgrad, indem eine Wärmetauscherbeziehung zwischen den verschiedenen Komponenten vorgesehen wird, wodurch ein Vorheizen, ein Verdampfen, etc. ohne eine zusätzliche Wärmequelle ermöglicht wird. Schließlich ermöglicht das Segment 34 für thermische POX, dass der autotherme Reaktor 14 Übergangsleistungsanforderungen wie auch eine Erwärmung der anderen Komponenten für den normalen Betrieb handhaben kann.

[0041] Es sei angemerkt, dass beispielhafte Reaktionstemperaturen der Prozesse in der Literatur zu finden sind und hier als Hintergrund nur zur Information vorgesehen sind. Die autothermen Reaktionen werden bei einer Temperatur von etwa 600°C bis 1000°C durchgeführt. Die WGS-Reaktion wird bevorzugt in zwei Shifts durchgeführt, nämlich einem Hochtemperatur-Shift bei einer Temperatur zwischen 300 und 600°C und einem Niedertemperatur-Shift bei einer Temperatur unter 300°C. Die PROX-Reaktion wird bevorzugt bei einer Temperatur unterhalb des Niedertemperatur-Shifts durchgeführt, und die Reaktion des PEM-Brennstoffzellenstapels wird sogar noch niedriger, nämlich bei einer geeigneten Temperatur für die empfindlichen MEA-Komponenten durchgeführt.

[0042] Gemäß der vorliegenden Ausführungsform der vorliegenden Erfindung ist ein Reformierungssegment 40 der zweiten Stufe von dem Segment 34 für thermische POX und dem Reformierungssegment 36 der ersten Stufe umgeben. Obwohl dieser Aufbau bevorzugt ist, sei angemerkt, dass alternative Ausführungen möglich sind, die umfassen können, dass das Segment 34 für thermische POX und das Reformierungssegment 36 der ersten Stufe zentral positioniert und von dem Reformierungssegment 40 der zweiten Stufe umgeben sind. Es sei auch angemerkt, dass

eine derartige alternative Ausführung eine entsprechend umgestaltete Vormischkammer 32 und einen entsprechend umgestalteten Verdampfer 42 erfordern würde, deren detaillierte Beschreibung vorher dargelegt wurde.

[0043] Zusammengefasst ist ein kompakter autothermer (partial oxidierender und Wasserdampf reformierender) Brennstoffreaktor zur Verwendung in einem Brennstoffzellensystem vorgesehen. Der Reaktor umfasst eine Vormischkammer, um ein Volumen aus Luft, Wasserdampf und Brennstoff in einem Abfluss vorzumischen, einen Reaktor für thermische POX, ein Reformierungssegment der ersten Stufe, eine nachbehandelnde Vormischkammer und ein Reformierungssegment der zweiten Stufe. Es ist ferner ein Verdampfer für Wasser und Brennstoff vorgesehen, um Wasserdampf und Brennstoff als ein Gas an die Vormischkammer und einen Luftdurchflusshohlraum zu liefern, der um den Reaktor herum angeordnet ist, um an die Vormischkammer gelieferte Luft vorzuerhitzen. Das Segment für thermische POX arbeitet während einer anfänglichen Startperiode zur Vorerhitzung der anderen Komponenten des Reaktors. Sobald die anderen Komponenten eine Betriebstemperatur erreichen, reformieren die Reformierungssegmente der ersten und zweiten Stufe katalytisch den Abfluss. Die Vormischkammer sowie die nachbehandelnde Vormischkammer ermöglichen eine Veränderung der O/C- und S/C-Verhältnisse, die erzielt werden, wenn der Abfluss durch die Mehrzahl von Stufen reformiert wird.

Patentansprüche

 Autothermer Reaktor zur Reformierung eines Kohlenwasserstoff-Brennstoffstroms in einen wasserstoffreichen Reformatstrom, wobei der autotherme Reaktor umfasst:

eine Vormischkammer zum Mischen des Kohlenwasserstoff-Brennstoffstroms mit zumindest einer der Substanzen Luft und Wasserdampf, um einen gemischten Reaktandenstrom zu erzeugen;

einen katalytischen Reformer der ersten Stufe zur partiellen Reformierung des gemischten Reaktandenstroms in einen Abflussstrom, wobei der katalytische Reformer der ersten Stufe in Fluidverbindung mit einem Auslass der Vormischkammer steht;

eine nachgeordnete Vormischkammer zum Mischen des Abflussstroms mit zumindest einer der Substanzen Luft, Wasserdampf und Brennstoffdampf, wobei die nachgeordnete Vormischkammer in Fluidverbindung mit einem Auslass des katalytischen Reformers der ersten Stufe steht;

einen katalytischen Reformer der zweiten Stufe zur weiteren Reformierung des Abflussstroms, um den Reformatstrom zu bilden, wobei der katalytische Reformer der zweiten Stufe in Fluidverbindung mit einem Auslass der nachgeordneten Vormischkammer und in Wärmetauscherverbindung mit dem katalytischen Reformer der ersten Stufe steht; und

einen thermischen Reaktor zur Verbrennung des Kohlenwasserstoff-Brennstoffs mit Luft, um einen Verbrennungsstrom während einer Startperiode vor Lieferung des Kohlenwasserstoff-Brennstoffstroms und der zumindest einen der Substanzen Luft und Wasserdampf an die Vormischkammer zu bilden, wobei der thermische Reaktor einen Auslass aufweist, um den Verbrennungsstrom an die katalytischen Reformer der ersten und zweiten Stufe zur Erwärmung der katalytischen Reformer der ersten und zweiten Stufe zu liefern, um ihre normalen Betriebstemperaturen herzustellen.

- 2. Autothermer Reaktor nach Anspruch 1, wobei der katalytische Reformer der ersten Stufe einen der Abschnitte katalytischer Partialoxidationsabschnitt und katalytischer Wasserdampfreformierungsabschnitt umfasst.
- 3. Autothermer Reaktor nach Anspruch 1, wobei der katalytische Reformer der zweiten Stufe einen der Abschnitte katalytischer Partialoxidationsabschnitt und katalytischer Wasserdampfreformierungsabschnitt umfasst.
- 4. Autothermer Reformer nach Anspruch 1, wobei der katalytische Reformer der zweiten Stufe in den katalytischen Reformer der ersten Stufe eingebettet ist, um eine Wärmetauscherbeziehung dazwischen zu bilden.
- 5. Autothermer Reaktor nach Anspruch 4, wobei endotherme Komponenten des katalytischen Reformers der ersten Stufe in Wärmetauscherbeziehung mit exothermen Komponenten des katalytischen Reformers der zweiten Stufe stehen.
- 6. Autothermer Reaktor nach Anspruch 4, wobei endotherme Komponenten des katalytischen Reformers der zweiten Stufe in Wärmetauscherbeziehung mit exothermen Komponenten des katalytischen Reformers der ersten Stufe stehen.
- 7. Autothermer Reaktor nach Anspruch 1, ferner mit einer Außenschale, die einen Durchgang hindurch aufweist, der in Fluidverbindung mit der Vormischkammer und in Wärmetauscherverbindung mit anderen Komponenten des autothermen Reaktors steht.
- 8. Autothermer Reaktor nach Anspruch 7, wobei ein Luft- Durchfluss durch den Durchgang geführt wird, wodurch die Luft vor Eintritt in die Vormischkammer vorerhitzt wird.
- 9. Autothermer Reaktor nach Anspruch 1, ferner mit einem Verdampfer in Fluidverbindung mit der Vormischkammer und in Wärmetauscherverbindung mit dem Reformatstrom, der den katalytischen Reformer der zweiten Stufe verlässt, wodurch Wärme von dem

Reformatstrom ermöglicht, dass der Verdampfer zumindest eine der Substanzen Brennstoff und Wasser, die an die Vormischkammer geliefert werden, verdampft.

10. Autothermer Reaktor nach Anspruch 1, wobei die Vormischkammer umfasst:

eine Mischkammer in Fluidverbindung mit einer Luftquelle:

eine Vielzahl von radial angeordneten Brennstoffdampfinjektoren in Fluidverbindung mit der Mischkammer;

eine Vielzahl von radial angeordneten Wasserdampfinjektoren in Fluidverbindung mit der Mischkammer;

ein Gitter, dass in der Mischkammer angeordnet ist und eine Vielzahl von Vormischinjektionslöchern aufweist;

wodurch Luft durch das Gitter strömt, um sich mit Brennstoff und Wasserdampf zu mischen, die durch die Injektoren geliefert werden, um den ersten Abfluss zu bilden.

- 11. Autothermer Reaktor nach Anspruch 10, ferner mit einer Außenschale, die einen Durchgang hindurch aufweist, der in Fluidverbindung mit der Vormischkammer und in Wärmetauscherverbindung mit anderen Komponenten des autothermen Reaktors steht, wobei eine Luftströmung durch den Durchgang hindurch gelangt und vor Eintritt in die Vormischkammer vorerhitzt wird.
- 12. Autothermer Reaktor nach Anspruch 10, ferner mit einem Verdampfer in Fluidverbindung mit der Vormischkammer und in Wärmetauscherverbindung mit dem Reformatstrom, der den katalytischen Reformer der zweiten Stufe verlässt, wodurch Wärme von dem Reformatstrom einen Betrieb des Verdampfers ermöglicht, um zumindest eine der Substanzen Brennstoff und Wasser zu verdampfen, die durch die Brennstoffdampf- und Wasserdampfinjektoren an die Vormischkammer geliefert werden.
- 13. Autothermer Reaktor nach Anspruch 1, ferner mit einem Übergangstemperatursteuerelement, das zwischen dem thermischen Reformer und dem katalytischen Reformer der ersten Stufe angeordnet ist.
- 14. Verfahren zum Betrieb eines autothermen Reaktors zur Reformierung eines Kohlenwasserstoff-Brennstoffs in einen wasserstoffreichen Reformatstrom, mit den Schritten, dass

ein Reaktor für thermische Partialoxidation des autothermen Reaktors für eine ersten Periode zur thermischen Reformierung des Brennstoffs und zur Erzeugung von Wärme betrieben wird;

Komponenten des autothermen Reaktors während der ersten Periode erhitzt werden;

nachdem die Komponenten eine Betriebstemperatur erreicht haben, in eine zweite Periode geschaltet

wird:

der Kohlenwasserstoff-Brennstoffstrom mit zumindest einer der Substanzen Luft und Wasserdampf zur Erzeugung eines gemischten Reaktandanstroms vorgemischt wird;

der gemischte Reaktandenstrom in einem katalytischen Reformer der ersten Stufe des autothermen Reaktors zur Erzeugung eines Abflussstroms reformiert wird;

der Abflussstrom in einem katalytischen Reformer der zweiten Stufe des autothermen Reaktors zur Erzeugung des Reformatstroms reformiert wird;

gleichzeitig Wärme zwischen Komponenten des autothermen Reaktors zur Beibehaltung ihrer Betriebstemperaturen während der zweiten Periode übertragen wird.

- 15. Verfahren nach Anspruch 14, ferner mit dem Schritt, dass der Abflussstrom mit zumindest einer der Substanzen Luft, Brennstoff und Wasserdampf vor Reformierung in dem katalytischen Reformer der zweiten Stufe nachbehandelnd vorgemischt wird.
- 16. Verfahren nach Anspruch 14, ferner mit den Schritten, dass ein Abschnitt für katalytische Partialoxidation und ein Abschnitt für katalytische Wasserdampfreformierung vorgesehen werden, die der Reformer der ersten Stufe umfasst.
- 17. Verfahren nach Anspruch 14, ferner mit den Schritten, dass ein Abschnitt für katalytische Partialoxidation und ein Abschnitt für katalytische Wasserdampfreformierung vorgesehen werden, die der Reformer der zweiten Stufe umfasst.
- 18. Verfahren nach Anspruch 14, ferner mit den Schritten, dass

eine Außenschale mit einem Durchgang durch diese vorgesehen wird, die in Wärmetauscherverbindung mit den Komponenten des autothermen Reaktors steht;

Luft, die durch den Durchgang strömt, mit Wärme vorerhitzt wird, die während einer der ersten und zweiten Perioden erzeugt wird.

- 19. Verfahren nach Anspruch 14, ferner mit den Schritten, dass
- ein Verdampfer in Wärmetauscherverbindung mit dem Reformatstrom gebracht wird, der den Reformer der zweiten Stufe verlässt;
- der Verdampfer mit Wärme von dem Reformatstrom erhitzt wird; und
- zumindest eine der Substanzen Brennstoff und Wasser in dem Verdampfer zur Lieferung an den autothermen Reaktor verdampft werden.
- 20. Verfahren nach Anspruch 19, wobei der Verdampfer ferner in Wärmetauscherverbindung mit dem Reaktor für thermische Partialoxidation und dem Reformatstrom gebracht wird.

- 21. Verfahren nach Anspruch 14, ferner mit dem Schritt, dass eine Vormischkammer zum Vormischen des Kohlenwasserstoff-Brennstoffstroms mit zumindest einer der Substanzen Luft und Wasserdampf zur Erzeugung des gemischten Reaktandenstroms vorgesehen wird.
- 22. Verfahren nach Anspruch 21, ferner mit den Schritten, dass

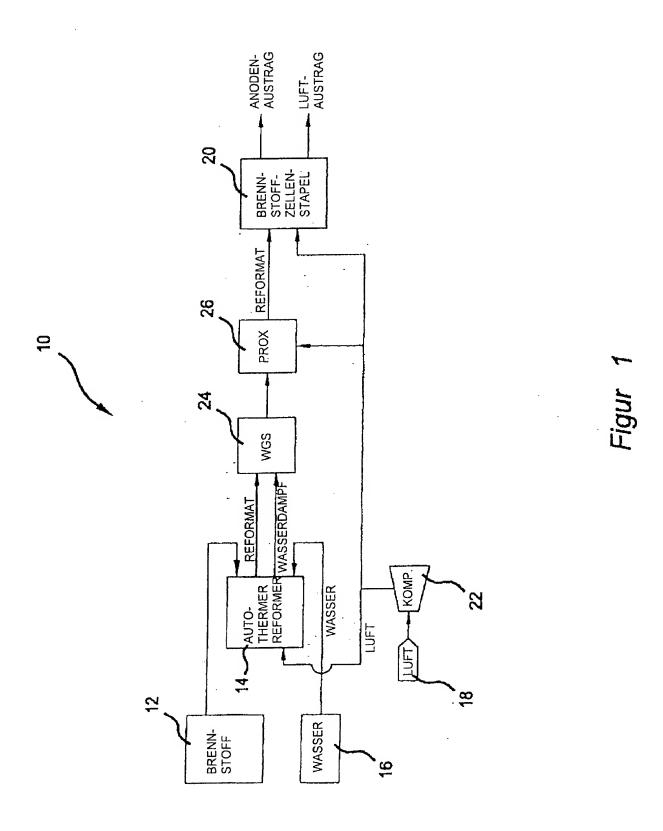
eine Mischkammer in Fluidverbindung mit einer Luftquelle vorgesehen wird;

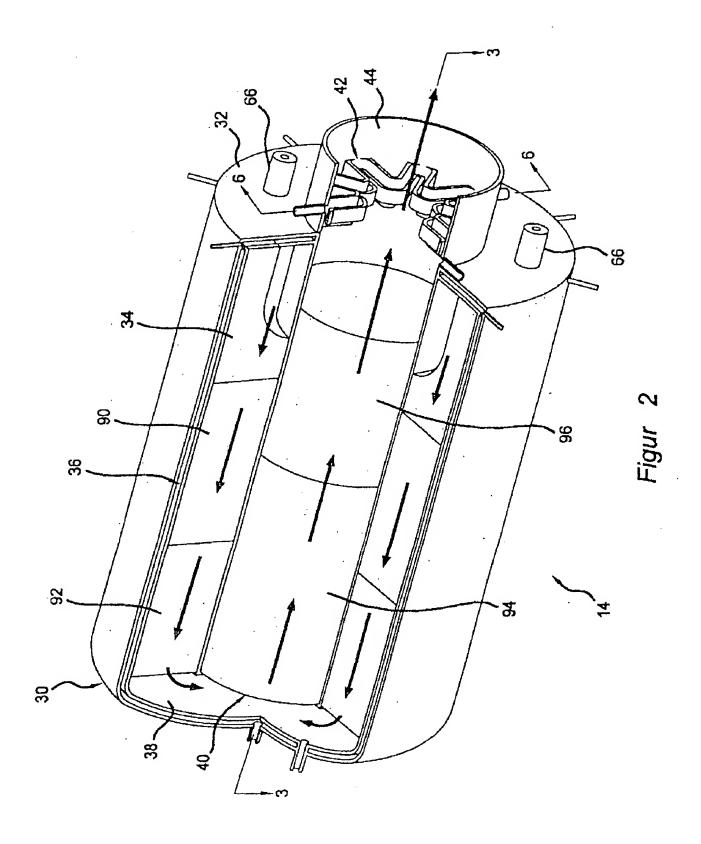
eine Vielzahl von radial angeordneten Brennstoffdampiinjektoren in Fluidverbindung mit der Mischkammer vorgesehen wird; eine Vielzahl von radial angeordneten Wasserdampfinjektoren in Fluidverbindung mit der Mischkammer vorgesehen wird; und ein Gitter vorgesehen wird, dass in der Mischkammer angeordnet ist und eine Vielzahl von Vormischinjektionslöchern aufweist.

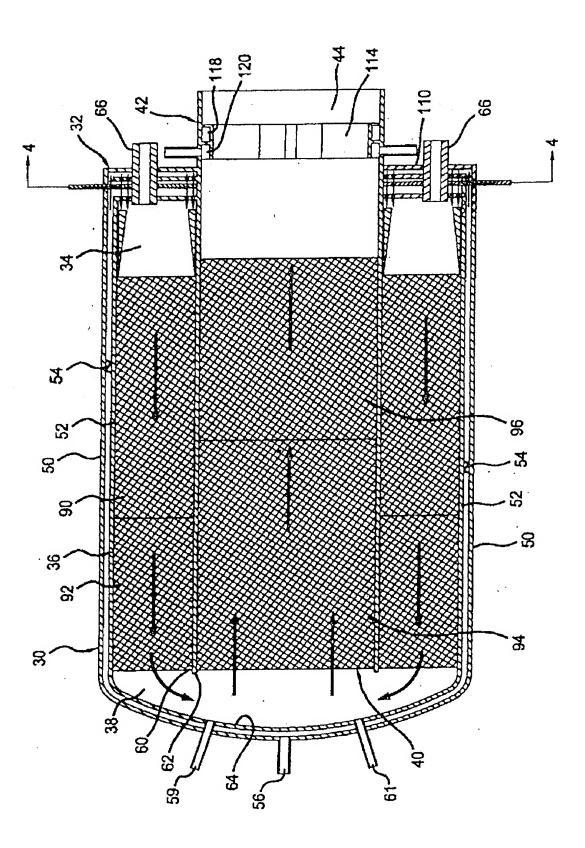
- 23. Verfahren nach Anspruch 14, wobei der gemischte Reaktandenstrom ein erstes Verhältnis von Sauerstoff zu Kohlenstoff aufweist und der Abflussstrom ein zweites Verhältnis von Sauerstoff zu Kohlenstoff aufweist.
- 24. Verfahren nach Anspruch 14, wobei der gemischte Reaktandenstrom ein erstes Verhältnis von Wasserdampf zu Kohlenstoff aufweist und der Abflussstrom ein zweites Verhältnis von Wasserdampf zu Kohlenstoff aufweist.

Es folgen 6 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen







Figur 3

